

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

YOSHIDA, Toshio
YOSHIDA PATENT OFFICE
No.202, Hillside Ebisu Bldg.
21-11, Ebisuminami 1-chome
Shibuya-ku, , Tokyo 150-0022
JAPON



Date of mailing (day/month/year)

06 December 2001 (06.12.01)

Applicant's or agent's file reference

16765

IMPORTANT NOTICE

International application No.

PCT/JP01/04010

International filing date (day/month/year)

15 May 2001 (15.05.01)

Priority date (day/month/year)

30 May 2000 (30.05.00)

Applicant

NOK CORPORATION et al

- Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this notice:

KP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

- The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AE,AG,AL,AM,AP,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EA,EC,
EE,EP,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,KE,KG,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,
MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,OA,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

- Enclosed with this notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 06 December 2001 (06.12.01) under No. WO 01/92411

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination (at present, all PCT Contracting States are bound by Chapter II).

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and the PCT Applicant's Guide, Volume II.

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Faxsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

J. Zahra

Telephone No. (41-22) 338.91.11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04010

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| | & JP 10-114552 A | |
| A | JP 6-345915 A (The Yokohama Rubber Co., Ltd.), 20 December, 1994 (20.12.94), entire description (Family: none) | 1-8 |
| A | JP 5-263941 A (Kureha Rubber Co., Ltd.), 12 October, 1993 (12.10.93), entire description (Family: none) | 1-8 |

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int. Cl' C08L23/22, C08K3/04, C09K3/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int. Cl' C08L23/22, C08K3/00-13/08, C09K3/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|------------------|
| Y | JP 9-3278 A(北辰工業株式会社)7.1月.1997(07.01.97), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |
| Y | JP 4-120186 A(協和化工株式会社)21.4月.1992(21.04.92), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13.07.01

国際調査報告の発送日

24.07.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

三谷 祥子



4 J 9362

電話番号 03-3581-1101 内線 6832

| C(続き) 関連すると認められる文献 | 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|--------------------|-----------------|--|------------------|
| | Y | JP 62-273279 A(テロソン ゲーエムベーハー)27.11月.1987 (27.11.87), 全明細書 & EP 244738 A2 & DE 3615241 A & BR 8702262 A | 1-8 |
| | A | WO 97/23561 A1(旭硝子株式会社)3.7月.1997(03.07.97), 全明細書 & CA 2213799 A & EP 811656 A1 & JP 10-110072 A & JP 10-114551 A & JP 10-114552 A | 1-8 |
| | A | JP 6-345915 A(横浜ゴム株式会社)20.12月.1994(20.12.94), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |
| | A | JP 5-263941 A(吳羽ゴム工業株式会社)12.10月.1993(12.10.93), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04010

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08L23/22, C08K3/04, C09K3/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L23/22, C08K3/00-13/08, C09K3/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y | JP 9-3278 A (Hokushin Ind. Inc.), 07 January, 1997 (07.01.97), entire description (Family: none) | 1-8 |
| Y | JP 4-120186 A (Kyopwa Kako K.K.), 21 April, 1992 (21.04.92), entire description (Family: none) | 1-8 |
| Y | JP 62-273279 A (Terosom GmbH), 27 November, 1987 (27.11.87), entire description & EP 244738 A2 & DE 3615241 A & BR 8702262 A | 1-8 |
| A | WO 97/23561 A1 (Asahi Glass Co., Ltd.), 03 July, 1997 (03.07.97), entire description & CA 2213799 A & EP 811656 A1 & JP 10-110072 A & JP 10-114551 A | 1-8 |

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

| | |
|---|--|
| Date of the actual completion of the international search 13 July, 2001 (13.07.01) | Date of mailing of the international search report 24 July, 2001 (24.07.01) |
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | Authorized officer |
| Faxsimile No. | Telephone No. |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/04010

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| | & JP 10-114552 A | |
| A | JP 6-345915 A (The Yokohama Rubber Co., Ltd.), 20 December, 1994 (20.12.94), entire description (Family: none) | 1-8 |
| A | JP 5-263941 A (Kureha Rubber Co., Ltd.), 12 October, 1993 (12.10.93), entire description (Family: none) | 1-8 |

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年12月6日 (06.12.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/92411 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08L 23/22, C08K 3/04, C09K 3/10

(21) 国際出願番号: PCT/JP01/04010

(22) 国際出願日: 2001年5月15日 (15.05.2001)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2000-159508 2000年5月30日 (30.05.2000) JP
特願2000-281091 2000年9月18日 (18.09.2000) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): エヌオーケー株式会社 (NOK CORPORATION) [JP/JP]; 〒105-8585 東京都港区芝大門一丁目12-15 Tokyo (JP). 株式会社 デンソー (DENSO CORPORATION) [JP/JP]; 〒448-8661 愛知県刈谷市昭和町1-1 Aichi (JP).

(72) 発明者: および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 工藤正嗣 (KUDO, Masashi) [JP/JP]. 雨宮 崇 (AMEMIYA, Takashi) [JP/JP]; 〒251-0042 神奈川県藤沢市辻堂新町四丁目3-1 エヌオーケー株式会社内 Kanagawa (JP). 飯田 新 (HIDA, Arata) [JP/JP]; 〒448-0029 愛知県刈谷市昭和町1-1 株式会社 デンソー内 Aichi (JP).

(54) Title: BUTYL RUBBER COMPOSITION

(54) 発明の名称: プチルゴム組成物

(57) Abstract: A butyl rubber composition which comprises 100 parts by weight of butyl rubber and 30 to 150 parts by weight of carbon black having a CTAB specific surface area of 30 to 100 m²/g. It preferably further contains 10 to 100 parts by weight of a flaky filler having an average particle diameter of 1 to 40 μm and an aspect ratio of 5 or higher and 0.05 to 5 parts by weight of an organometallic compound coupling agent. The rubber composition can give a vulcanized molding which can effectively seal a carbon dioxide refrigerant and does not suffer blistering, etc. when used in this application.

(57) 要約:

プチルゴム100重量部当りCTAB比表面積が30~100m²/gのカーボンブラックを30~150重量部、好ましくはさらに平均粒子径が1~40μmでaspect比が5以上の偏平状充填剤10~100重量部および有機金属化合物カップリング剤0.05~5重量部を添加したプチルゴム組成物。このゴム組成物は、二酸化炭素冷媒を有效地シールすることができ、そこにブリスタなどを発生させない加硫成形品を与えることができる。

WO 01/92411 A1

明細書

ブチルゴム組成物

5 技術分野

本発明は、ブチルゴム組成物に関する。更に詳しくは、二酸化炭素を冷媒とするエアコン用のシール材成形材料などとして有効に用いられるブチルゴム組成物に関する。

10 背景技術

従来、エアコン用の冷媒としてはフロン系ガスが用いられているが、フロン系ガスはその化学構造より、オゾン層を破壊したり、地球を温暖化させるなど地球環境を破壊することが知られている。そこで、より地球環境にやさしい冷媒の研究がなされており、その一つとして二酸化炭素(CO₂)が注目されているが、CO₂は高分子物質に対する溶解性が大きく、シール材内部を透過したり、使用環境での圧力変化によるブリスタの発生などを生じ、CO₂をシールできる材料が未だ見出されていない状況にある。

20 発明の開示

本発明の目的は、二酸化炭素冷媒を有効にシールすることができ、そこにブリスタなどを発生させない加硫成形品を与え得るブチルゴム組成物を提供することにある。

かかる本発明の目的は、ブチルゴム100重量部当りCTAB比表面積(ASTM D 3765準拠)が30～100m²/gのカーボンブラックを30～150重量部添加したブチルゴム組成物によって達成される。このブチルゴム組成物中には、

さらに平均粒子径が1～40 μm でアスペクト比が5以上の偏平状充填剤10～100重量部および有機金属化合物カップリング剤0.05～5重量部が添加されていることが好ましい。

5 ブチルゴムは、イソブチレンとイソブレンとの共重合体であって、イソブレンを最大3モル%程度共重合させているが、本発明においては2モル%程度イソブレンを共重合させたものが好んで用いられる。

ブチルゴムに添加されるカーボンブラックとしては、CTAB(セチルトリメチルアンモニウムプロマイド)比表面積が30～100 m^2/g 、好ましくは35～95 m^2/g のものが、ブチルゴム100重量部当り30～150重量部、好ましくは50～130重量部の割合で用いられる。カーボンブラックのCTAB比表面積がこれ以上のものを用いると、補強性が強すぎてゴムコンパウンドの粘度上昇や分散不良などを生じ、一方これ以下のCTAB比表面積のものを用いると、実用レベルの補強性が得られず、CO₂冷媒に接したとき発泡を生ずるようになる。また、これ以下の配合割合のときも、CTAB比表面積が小さい場合と同様であり、一方これ以上の配合割合で用いると、ゴムコンパウンドの粘度上昇によって混練が困難となるばかりではなく、加硫成形品が非常に硬くなってしまう。

20 このような特定の比表面積を有するカーボンブラックと共に、偏平状充填剤を併用すると、冷媒として用いられる二酸化炭素の遮蔽性をさらに低下させることができる。偏平状充填剤としては、例えばクレー、マイカ(雲母粉)、グラファイト、二硫化モリブデン等が、ブチルゴム100重量部当り10～100重量部、好ましくは30～80重量部の割合で用いられる。

25 これらの偏平状充填剤は、平均粒子径が1～40 μm 、好ましくは5～30 μm で、アスペクト比が5以上、好ましくは10～30のものが用いられる。平均粒子径がこれ以下あるいはアスペクト比がこれ以下のものを用いる

と、冷媒遮蔽性の向上がみられない。一方、これ以上の平均粒子径のものを用いると、実用レベルの補強性が得られないばかりではなく、二酸化炭素冷媒に接したときプリスタを生ずるようになる。また、添加割合が10重量部以下では、冷媒遮蔽性の向上がみられず、一方100重量部以上⁵の添加割合で用いられると、平均粒子径が大きい場合と同様に二酸化炭素冷媒に接したときにプリスタが発生するようになる。

冷媒遮蔽性向上のために偏平状充填剤を用いた場合には、有機金属化合物カップリング剤を、ブチルゴム100重量部当り0.05～5重量部、好ましくは0.1～3重量部併用することが必要である。これ以下の添加割合で¹⁰はカップリングの効果がみられず、二酸化炭素冷媒に接したときプリスタを生ずるようになる。一方、これ以上の添加割合で用いられると架橋阻害がみられるようになり、耐圧縮永久歪特性が悪化するようになる。

有機金属化合物カップリング剤としては、例えばビニルトリメトキシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス(2-メトキシエトキシ)シラン、ビニルトリクロルシラン、 α -グリシドキシプロピルトリメトキシラン、 α -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 α -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 α -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 α -メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、 α -メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、 α -メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン等のシランカップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルパイルホスフェート)チタネート、イソプロピルトリ(N-アミノエチル-アミノエチル)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、ビス(ジオクチルパイルホスフェート)オキシアセテートチタネート、ビス(ジオクチルパイルホスフェート)エチレンチタネート等のチタンカップリング剤、アルミニウムエチレート、ア

ルミニウムイソプロピレート、アルミニウムイソプロピネートモノセカ
ンダリープチレート、アルミニウムセカンダリープチレート、アルミニ
ウムアルキルアセトアセテートジイソプロピレート、アルミニウムトリ
スアセチルアセトネート、アルミニウムアルキルアセトアセテート等の
5 アルミニウムカップリング剤が単独または2種類以上組合せて用いられ
る。

架橋剤としては、イオウ(供与体)、モルホリン、キノイド、ハロゲン
化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂等ブチルゴムに使用可能な
架橋剤であれば、任意のものを使用することができる。ブチルゴム組成
10 物中には、以上の各成分以外に、ホワイトカーボン等の補強剤、タルク、
クレー、グラファイト、けい酸カルシウム等の充填剤、ステアリン酸、
パルミチン酸、パラフィンワックス等の加工助剤、酸化亜鉛、酸化マグ
ネシウム等の受酸剤、老化防止剤、可塑剤などの各種配合剤が、必要に
応じて適宜添加されて用いられる。

15 組成物の調製は、インターミックス、ニーダ、バンバリーミキサ等の
混練機またはオープンロールなどを用いて混練することによって行われ、
それの加硫は射出成形機、圧縮成形機、加硫プレス等を用いて、約150
～200°Cで約3～60分間程度加熱することによって行われ、その後必要に
応じて約120～200°Cで約1～24時間程度オープン加硫(二次加硫)するこ
20 とが行われる。

発明を実施するための最良の形態

次に、実施例について本発明を説明する。

実施例 1

25 ブチルゴム(日本合成ゴム製品ブチル365; 100重量部
イソブレン含量2モル%)

カーボンブラック(CTAB比表面積50m²/g) 80 //

酸化亜鉛 5 //

ハロゲン化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂 5 //

以上の各成分をニーダおよびオープンロールで混練し、混練物について

5 170°Cで30分間のプレス加硫および140°Cで10時間のオープン加硫(二次加硫)を行ない、150×150×2mmの加硫シートを得た。

この加硫シートについて、JIS K-6253およびJIS K-6251に準拠して常態物性を測定すると共に、液化CO₂中に25°Cで24時間浸せきした後150°Cに1時間加熱して、表面ブリスタ発生の有無を目視で観察した。

10 実施例2

実施例1において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積が80m²/gのものが70重量部用いられた。

比較例1

15 実施例1において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積が10m²/gのものが150重量部用いられた。

比較例2

実施例1において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積が120m²/gのものが50重量部用いられた。

比較例3

20 実施例1において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積が90m²/gのものが20重量部用いられた。

比較例4

実施例1において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積が30m²/gのものが170重量部用いられた。

25 以上の各実施例および比較例での測定および評価結果は、次の表1に示される。なお、比較例2および比較例4では、混練自体が不能であった。

表 1

| | <u>測定・評価項目</u> | <u>実-1</u> | <u>実-2</u> | <u>比-1</u> | <u>比-3</u> |
|---------------------------|---|------------|------------|------------|------------|
| [常態物性] | | | | | |
| 5 | 硬さ (デュロメーターA) | 81 | 80 | 78 | 60 |
| | 引張強さ (MPa) | 15.3 | 16.4 | 7.3 | 8.9 |
| | 伸び (%) | 220 | 270 | 210 | 200 |
| [耐CO₂性] | | | | | |
| | ブリスタ発生の有無 | なし | なし | あり | あり |
| 実施例 3 | | | | | |
| 10 | ブチルゴム(ブチル365) | | | 100重量部 | |
| | カーボンブラック(CTAB比表面積50m ² /g) | | 60 | // | |
| | 偏平状グラファイト(平均粒子径10μm、アスペクト比20) | 30 | // | | |
| | γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン | 1 | // | | |
| | 酸化亜鉛 | 5 | // | | |
| 15 | ハロゲン化アルキルフェノールホルムアルデヒド樹脂 | 5 | // | | |
| | 以上の各成分を用い、実施例1と同様に混練、加硫、測定および評価を行った。測定では、常態物性および耐CO ₂ 性の他に、JIS K-6262に準拠した圧縮永久歪(120°C、70時間)およびASTM D-1434に準拠したCO ₂ 遮蔽性(70°C)の測定も行われた。 | | | | |
| 20 | 実施例 4 | | | | |
| | 実施例3において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積80m ² /gのものが50重量部用いられた。 | | | | |
| | 実施例 5 | | | | |
| 25 | 実施例3において、偏平状グラファイトとして平均粒子径2μm、アスペクト比10のものが同量用いられた。 | | | | |
| | 実施例 6 | | | | |

実施例3において、 α -グリシドキシプロピルトリメトキシシランの代りにイソプロピルトリイソステアロイルチタネートが同量用いられた。

実施例7

実施例3において、 α -グリシドキシプロピルトリメトキシシランの代りにアルミニウムアルキルアセトアセテートが同量用いられた。

以上の実施例3~7での測定および評価結果は、次の表2に示される。

表2

| | 測定・評価項目 | 実-3 | 実-4 | 実-5 | 実-6 | 実-7 |
|---------------------------|---|------|------|------|------|------|
| [常態物性] | | | | | | |
| 10 | 硬さ (デュロメーターA) | 80 | 81 | 83 | 80 | 80 |
| | 引張強さ (MPa) | 14.3 | 15.0 | 15.1 | 14.5 | 14.7 |
| | 伸び (%) | 260 | 240 | 220 | 260 | 250 |
| [圧縮永久歪] | | | | | | |
| | 120°C、70時間 (%) | 27 | 26 | 25 | 28 | 27 |
| 15 | [CO₂遮蔽性] | | | | | |
| | 透過係数(cc・mm/m ² ・24hr・atm) | 700 | 750 | 850 | 700 | 700 |
| [耐CO₂性] | | | | | | |
| | ブリストラ発生の有無 | なし | なし | なし | なし | なし |
| 比較例5 | | | | | | |
| 20 | 実施例3において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積10m ² /gのものが120重量部用いられた。 | | | | | |
| 比較例6 | | | | | | |
| | 実施例3において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積120m ² /gのものが40重量部用いられた。 | | | | | |
| 25 | 比較例7 | | | | | |
| | 実施例3において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積90m ² /gのも | | | | | |

のが15重量部用いられた。

比較例 8

実施例3において、カーボンブラックとしてCTAB比表面積 $30\text{m}^2/\text{g}$ のものが160重量部用いられた。

5 比較例 9

実施例3において、偏平状グラファイトとして平均粒子径 $0.5\mu\text{m}$ 、アスペクト比10のものが同量用いられた。

比較例 10

実施例3において、偏平状グラファイトの代わりに平均粒子径 $50\mu\text{m}$ 、

10 アスペクト比20の扁平状マイカが同量用いられた。

比較例 11

実施例3において、偏平状グラファイトの代わりに平均粒子径 $10\mu\text{m}$ 、アスペクト比1の球状クレーが同量用いられた。

比較例 12

15 実施例3において、カーボンブラック量が75重量部に、また偏平状グラファイト量が5重量部にそれぞれ変更された。

比較例 13

実施例3において、カーボンブラック量が30重量部に、また偏平状グラファイト量が120重量部にそれぞれ変更された。

20 比較例 14

実施例3において、 γ -グリシドキシプロビルトリメトキシシランが用いられなかった。

比較例 15

実施例3において、 γ -グリシドキシプロビルトリメトキシシラン量が25 10重量部に変更された。

以上の比較例5～15での測定および評価結果は、次の表3に示される。

なお、比較例6および比較例8では、混練自体が不能であった。

表3

| | | 比較例 | | | | | | | | |
|---------|---|-----|------|------|------|------|------|-----|------|------|
| 測定・評価項目 | | 5 | 7 | 9 | 10 | 11 | 12 | 13 | 14 | 15 |
| 5 | [常態物性] | | | | | | | | | |
| | 硬さ (デュロ メーターA) | 82 | 79 | 81 | 80 | 82 | 81 | 79 | 80 | 77 |
| | 引張強さ (MPa) | 8.7 | 12.4 | 15.6 | 13.5 | 15.1 | 15.9 | 6.9 | 14.5 | 12.7 |
| | 伸び (%) | 270 | 290 | 240 | 290 | 270 | 260 | 190 | 280 | 460 |
| 10 | [圧縮永久歪] | | | | | | | | | |
| | 120°C、70時間(%) | 24 | 29 | 26 | 32 | 25 | 21 | 35 | 25 | 68 |
| | [CO ₂ 遮蔽性] | | | | | | | | | |
| | 透過係数(cc · mm/ m ² · 24hr · atm) | 600 | 850 | 1200 | 550 | 1400 | 1300 | 350 | 700 | 750 |
| 15 | [耐CO ₂ 性] | | | | | | | | | |
| | ブリスタ発生の有無 | あり | あり | なし | あり | なし | なし | あり | あり | なし |
| 20 | | | | | | | | | | |
| | また、実施例1~2、比較例1および比較例3におけるCO ₂ 遮蔽性 (透過係数) の値は、それぞれ1400、1400、1200および1600 (cc · mm/m ² · 24hr · atm) であった。 | | | | | | | | | |

産業上の利用可能性

本発明に係るブチルゴム組成物は、ブチルゴムに特定のCTAB比表面積を有するカーボンブラックを添加することにより構成され、二酸化炭素冷媒に対してもブリスタなどを発生させることなく、すぐれた二酸化炭素シール性を示す加硫成形品を与えることができる。特に、特定性状

の偏平状充填剤および有機金属化合物カップリング剤をカーボンブラックと共に併用した場合には、二酸化炭素冷媒のさらなる遮蔽性が確保されるようになる。

かかるすぐれた特性を示す本発明のブチルゴム組成物は、エアコンに
5 使用されるOリング、ガスケット、パッキン等のシール材、例えばスク
ィーズパッキン(Oリング、Xリング、Dリング等)の成形材料や二酸化炭
素冷媒に適用可能な冷凍機油(ポリアルキレングリコール等)のシール材
の成形材料などとして好適に使用することができる。

請求の範囲

1. プチルゴム100重量部当りCTAB(セチルトリメチルアンモニウムブロマイド)比表面積が30~100m²/gのカーボンブラックを30~150重量部添加してなるプチルゴム組成物。
- 5 2. 平均粒子径が1~40μmでアスペクト比が5以上の偏平状充填剤10~100重量部および有機金属化合物カップリング剤0.05~5重量部がカーボンブラックと併用された請求項1記載のプチルゴム組成物。
3. 二酸化炭素用成形材料として用いられる請求項1記載のプチルゴム組成物。
- 10 4. エアコン用シール材の成形材料として用いられる請求項3記載のプチルゴム組成物。
5. エアコン用スクイーズパッキンの成形材料として用いられる請求項4記載のプチルゴム組成物。
6. 二酸化炭素用成形材料として用いられる請求項2記載のプチルゴム
- 15 7. エアコン用シール材の成形材料として用いられる請求項6記載のプチルゴム組成物。
8. エアコン用スクイーズパッキンの成形材料として用いられる請求項7記載のプチルゴム組成物。

特許協力条約

E P · U S

P C T

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

| | | | |
|----------------------------|---|----------------------------|--|
| 出願人又は代理人 の書類記号 16765 | 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。 | | |
| 国際出願番号 PCT/JP01/04010 | 国際出願日 (日.月.年) 15.05.01 | 優先日 (日.月.年) 30.05.00 | |
| 出願人(氏名又は名称) エヌオーケー株式会社 | | | |

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。 この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。b. この国際出願は、スクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表 この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。3. 発明の單一性が欠如している(第II欄参照)。4. 発明の名称は 出願人が提出したものと承認する。 次に示すように国際調査機関が作成した。5. 要約は 出願人が提出したものと承認する。 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。6. 要約書とともに公表される図は、
第_____図とする。 出願人が示したとおりである. なし 出願人は図を示さなかった。 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08L23/22, C08K3/04, C09K3/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C08L23/22, C08K3/00-13/08, C09K3/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|------------------|
| Y | JP 9-3278 A(北辰工業株式会社)7.1月.1997(07.01.97), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |
| Y | JP 4-120186 A(協和化工株式会社)21.4月.1992(21.04.92), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13.07.01

国際調査報告の発送日

24.07.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

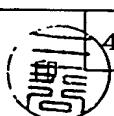
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

三谷 祥子

4 J

9362



電話番号 03-3581-1101 内線 6832

| C (続き) 関連すると認められる文献 | | |
|---------------------|--|------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| Y | JP 62-273279 A(テロソン ゲーエムベーハー)27.11月.1987 (27.11.87), 全明細書 & EP 244738 A2 & DE 3615241 A & BR 8702262 A | 1-8 |
| A | WO 97/23561 A1(旭硝子株式会社)3.7月.1997(03.07.97), 全明細書 & CA 2213799 A & EP 811656 A1 & JP 10-110072 A & JP 10-114551 A & JP 10-114552 A | 1-8 |
| A | JP 6-345915 A(横浜ゴム株式会社)20.12月.1994(20.12.94), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |
| A | JP 5-263941 A(吳羽ゴム工業株式会社)12.10月.1993(12.10.93), 全明細書(ファミリーなし) | 1-8 |